

BEST AVAILABLE COPY



PCT/EP200 4 / 0 0 9 3 3 9

# ÖSTERREICHISCHES PATENTAMT

A-1200 Wien, Dresdner Straße 87

Kanzleigebühr € 12,00  
Gebührenfrei  
gem. § 14, TP 1. Abs. 3  
Geb. Ges. 1957 idgF.

REC'D 29 SEP 2004

WIPO PCT

Aktenzeichen A 1346/2003

Das Österreichische Patentamt bestätigt, dass

**die Firma SURFACE SPECIALTIES AUSTRIA GMBH  
in A-8402 Werndorf, Bundesstraße 175  
(Steiermark),**

am **27. August 2003** eine Patentanmeldung betreffend

**"Bindemittel für strahlenhärtbare wässrige Lacke",**

überreicht hat und dass die beigeheftete Beschreibung mit der  
ursprünglichen, zugleich mit dieser Patentanmeldung überreichten  
Beschreibung übereinstimmt.

Österreichisches Patentamt

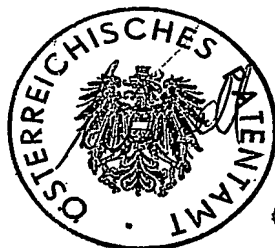
Wien, am 14. Juni 2004

Der Präsident:

i. A.

**PRIORITY  
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

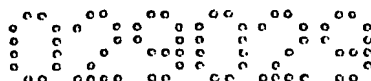


CSANDL

BEZÜGUNGSKOPIE

A 1346 / 2003

AT PATENTSCHRIFT



(51) IPC:

(11) Nr. **Urtext**

(Bei der Anmeldung sind nur die eingerahmten Felder auszufüllen - bitte fett umrandete Felder unbedingt ausfüllen!)

(73)	Patentinhaber: <b>Surface Specialties Austria GmbH</b> <b>Werndorf (AT)</b>
(54)	Titel der Anmeldung: <b>Bindemittel für strahlenhärtbare wäßrige Lacke</b>
(61)	Zusatz zu Patent Nr.
(66)	Umwandlung von
(62)	gesonderte Anmeldung aus (Teilung):
(30)	Priorität(en):
(72)	Erfinder:

(22) (21) Anmeldetag, Aktenzeichen:

**2003 08 27,**

(60) Abhängigkeit:

(42) Beginn der Patentdauer:

Längste mögliche Dauer:

(45) Ausgabetag:

(56) Entgegenhaltungen, die für die Beurteilung der Patentierbarkeit in Betracht gezogen wurden:



## 5 Bindemittel für strahlenhärtbare wäßrige Lacke

Die Erfindung betrifft Bindemittel für strahlenhärtbare wäßrige Lacke.

10 Wäßrige Lacke, die durch Bestrahlung mit UV-Licht härtbar sind, sind bekannt aus der EP-B 0 694 531 und aus der AT-B 404 733. Sie enthalten wasserverdünnbare Urethanharze als Bindemittel.

Diese Lacke weisen jedoch für den praktischen Gebrauch Nachteile auf. Insbesondere erfüllen sie nicht die Anforderungen an den Korrosionsschutz bei der Lackierung von Metallen.

15 Es besteht daher die Aufgabe, wasserverdünnbare Bindemittel für die Lackierung von Metallen, insbesondere unedlen Metallen, zur Verfügung zu stellen, die einen guten Korrosionsschutz ergeben, wobei die Härtung durch Bestrahlen mit energiereichem Licht erfolgen kann.

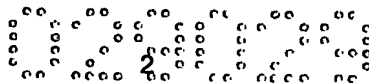
20 Es wurde gefunden, daß strahlungshärtbare wasserverdünnbare Lacke auf Basis von Bindemitteln, die von Epoxidharzen abgeleitet sind, zu Beschichtungen mit gutem Korrosionsschutz führen.

25 Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind daher Bindemittel für strahlenhärtbare wäßrige Lacke, enthaltend Reaktionsprodukte **ABCDE** aus Epoxidverbindungen **A** mit mindestens zwei Epoxidgruppen pro Molekül, ungesättigten Fettsäuren **B**, olefinisch ungesättigten Monomeren **C**, aliphatische Hydroxylgruppen enthaltenden ungesättigten Verbindungen **D** und multifunktionellen Isocyanaten **E**. Dabei sind die Verbindungen **C** stets direkt mit den Verbindungen **B** verbunden, ebenso wie die Verbindungen **D** stets direkt mit den Verbindungen **E** und die Verbindungen **A** stets direkt mit den Verbindungen **B** verbunden sind.

30 Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen Bindemittel.

Schließlich betrifft die Erfindung auch Mischungen der erfindungsgemäßen Bindemittel mit wäßrigen Dispersionen von Acrylat-Copolymerisaten.

35 Die Epoxidverbindungen **A** haben mindestens zwei Epoxidgruppen pro Molekül und können aliphatisch, aromatisch oder gemischt aromatisch-aliphatisch sein. Geeignete aliphatische Di- oder Polyepoxide sind insbesondere alpha, omega-Diepoxyalkane wie 1,5-Diepoxyhexan oder 1,7-Diepoxyoctan, oder Äther von Glycidylalkohol mit zwei- oder mehrwertigen Alkoholen mit 2 bis 20 Kohlenstoffatomen wie Butandiol diglycidyläther oder Hexandiol diglycidyläther und



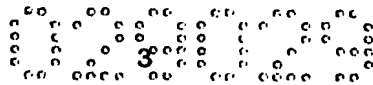
Trimethylolpropantriglycidyläther, Äther von Glycidylalkohol mit Polyäthylen- oder Polypropylenglykol, oder Ester des Glycidylalkohols mit zwei- oder mehrbasigen aliphatischen Carbonsäuren wie Adipinsäurediglycidylester, Hexahydrophthalsäurediglycidylester oder Diglycidylester von dimeren Fettsäuren. Geeignete aromatische Di- oder Polyepoxide sind Diepoxydivinylbenzol und Diepoxydivinylnaphthalin. Geeignete gemischt aromatisch-aliphatische Di- oder Polyepoxide sind die Diglycidyläther von Bisphenol A, Bisphenol F, Dihydroxydiphenyl oder Dihydroxydiphenylsulfon. Ebenso geeignet sind Additionsprodukte der genannten Di- oder Polyepoxide an zwei- oder mehrfunktionelle Hydroxyverbindungen, wie beispielsweise die durch Advancement-Reaktion gewonnene Epoxidharze auf Basis von Bisphenol A.

Die ungesättigten Fettsäuren **B** sind aliphatische lineare oder verzweigte Monocarbonsäuren und haben mindestens eine olefinische Doppelbindung und 6 bis 30 Kohlenstoffatome. Geeignet sind unter anderem Palmitoleinsäure, Ölsäure, Elaidinsäure, Linolsäure, Linolensäure, Eleostearinsäure, Arachidonsäure, Erucasäure und Clupanodonsäure sowie deren Mischungen, insbesondere die bei der Verseifung von Ölen gewonnenen technischen Mischungen.

Besonders bevorzugt sind solche Fettsäuren und Mischungen dieser Fettsäuren, die mindestens zwei olefinische Doppelbindungen aufweisen, die ebenfalls bevorzugt nicht konjugiert sind. Geeignet sind insbesondere Leinölfettsäure, Tallölfettsäure und Sonnenblumenölfettsäure.

Die olefinisch ungesättigten Monomeren **C** enthalten mindestens einen Massenanteil von 10 % einer olefinisch ungesättigten Säure, bevorzugt einer olefinisch ungesättigten Carbonsäure oder Dicarbonsäure. Es ist auch möglich, Halbester von olefinisch ungesättigte Dicarbonsäuren mit einem Mol eines Alkohols je einem Mol der Dicarbonsäure einzusetzen. Bevorzugte olefinisch ungesättigte Säuren sind die Acryl- und Methacrylsäure, die Vinyllessigsäure sowie die Croton- und Isocrotonsäure. Als Halbester sind zum Beispiel Monomethylester der Maleinsäure, der Fumarsäure, oder der Itacon-, Citracon- oder Mesaconsäure bevorzugt einzusetzen. In Mischung mit den genannten sauren Monomeren können Ester der genannten Säuren mit ein- oder mehrwertigen Alkoholen, wie Methyl(meth)Acrylat, Äthyl(meth)Acrylat, n- oder iso-Propyl(meth)Acrylat, n- oder tert.-Butyl(meth)Acrylat oder 2-Äthylhexyl(meth)Acrylat eingesetzt werden, ebenso Diester der genannten Dicarbonsäuren, wie Dimethylmaleinat, und die hydroxyfunktionellen Verbindungen (die auch als Verbindungen **D** eingesetzt werden) wie Hydroxyäthyl(meth)Acrylat, Hydroxypropyl(meth)Acrylat, Hydroxybutyl(meth)Acrylat und Trimethylolpropan-mono- oder -di-(meth)Acrylat. Weitere geeignete Monomere sind Styrol, Vinyltoluol, alpha-Methylstyrol, para-Methylstyrol, Vinylacetat und (Meth)Acrylnitril.

Die ungesättigten, Hydroxylgruppen enthaltenden aliphatischen Verbindungen **D** sind Ester: zwei- oder mehrwertiger Alkohole mit olefinisch ungesättigten Säuregruppen enthaltenden Monomeren,



insbesondere mit Acryl- und Methacrylsäure. Besonders geeignet sind Hydroxyäthyl- und Hydroxypropyl-(Meth)Acrylat.

Die multifunktionellen Isocyanate **E** sind aromatische, aliphatische und gemischt aromatisch-aliphatische Isocyanate mit mindestens zwei Isocyanatgruppen. Bevorzugt werden aliphatische Isocyanate und solche aromatischen Isocyanate, und unter diesen die Diisocyanate, bei denen die Isocyanatgruppen an ein aliphatisches Kohlenstoffatom gebunden sind, wie Xylylendiisocyanat und Tetramethylxylylendiisocyanat. Bevorzugte aliphatische Isocyanate sind lineare, verzweigte und cyclische Isocyanate mit 4 bis 12 Kohlenstoffatomen wie Hexamethylendiisocyanat, Trimethylhexandiisocyanat, Isophorondiisocyanat und 1,3- und 1,4-Bis(isocyanato)cyclohexan.

Die Erfindung betrifft auch ein Verfahren zur Herstellung der Bindemittel **ABCDE**, wobei im ersten Schritt die Epoxidverbindungen **A** mit den ungesättigten Fettsäuren **B** zu Addukten reagiert werden, wobei die Mengen der Edukte so gewählt werden, daß auf ein Mol der Epoxidgruppen in **A** mindestens 0,5 mol der Säuregruppen der Fettsäuren **B** kommen. Bevorzugt wird ein Verhältnis von mindestens 0,7 mol/mol und insbesondere 0,9 mol/mol bis 1,0 mol/mol. Im zweiten Schritt werden die so gebildeten Addukte **AB** mit den olefinisch ungesättigten Monomeren **C** in Gegenwart von radikalischen Initiatoren umgesetzt, wobei die Verbindungen **C** polymerisieren und zumindest teilweise Pfropfäste auf den Addukten **AB** bilden, und wobei die Pfropfung bevorzugt an den Doppelbindungen der Fettsäuren erfolgt. Die im zweiten Schritt gebildeten Pfropfcopolymerisate **ABC** werden anschließend durch Veresterung mit den in einem separaten Schritt hergestellten halbverkappten Isocyanaten **DE** aus der Reaktion der hydroxyfunktionellen olefinisch ungesättigten Monomeren **D** mit den multifunktionellen, bevorzugt difunktionellen Isocyanaten **E** zu den Produkten **ABCDE** umgesetzt. Dabei wird die Reaktion bevorzugt so geführt, daß das Stoffmengenverhältnis von Hydroxylgruppen in **DE** zu den Säuregruppen in **ABC** 0,2 bis 0,9 beträgt, bevorzugt wird das Stoffmengenverhältnis so gewählt, daß das Reaktionsprodukt **ABCDE** eine Säurezahl von 5 mg/g bis 80 mg/g, insbesondere von 10 mg/g bis 50 mg/g aufweist.

Die Säurezahl ist gemäß DIN EN ISO 3682 definiert als der Quotient derjenigen Masse  $m_{\text{KOH}}$  an Kaliumhydroxid, die erforderlich ist, um eine zu untersuchende Probe zu neutralisieren, und der Masse  $m_{\text{B}}$  dieser Probe (Masse des Feststoffes in der Probe bei Lösungen oder Dispersionen); ihre übliche Einheit ist "mg/g".

Die erfindungsgemäßen Bindemittel eignen sich besonders zur Formulierung von (durch UV-Strahlung oder durch Elektronenstrahlen) strahlenhärtenden Beschichtungsmitteln. Dazu werden Photoinitiatoren zugesetzt, die bei Bestrahlung mit energiereichem Licht Radikale bilden, die eine Härtung durch Polymerisation auslösen. Besonders bemerkenswert ist bei den erfindungsgemäßen Bindemitteln die gute Verträglichkeit mit wäßrigen Acrylatdispersionen. Solche Dispersionen können im Massenverhältnis bis zu 50:50 (jeweils bezogen auf die Masse der Festkörper der Dispersionen)

zugemischt werden, ohne daß die Härtungsgeschwindigkeit und die Eigenschaften des resultierenden Lackfilms negativ beeinflußt werden. Dabei eignen sich sowohl die bekannten, Hydroxylgruppen enthaltenden Acrylatdispersionen, als auch die selbstvernetzenden Acrylatdispersionen.

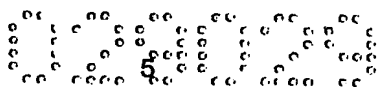
- 5 Bevorzugte Acrylatdispersionen sind selbstvernetzende Acrylatdispersionen auf Basis von Copolymerisaten von (Meth)Acrylsäureestern von linearen oder verzweigten aliphatischen Monoalkoholen mit 3 bis 10 Kohlenstoffatomen, (Meth)Acrylsäureestern des Methanols und Äthanols, (Meth)Acrylsäureestern von zweiwertigen aliphatischen Alkoholen mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, insbesondere von Glykol, 1,2- und 1,3-Propandiol, 1,2- und 1,4-Butandiol sowie 1,6-Hexandiol, Styrol und Vinyltoluol sowie Carbonylgruppen enthaltenden olefinisch ungesättigten Monomeren wie Diacetonacrylamid, und hydroxyfunktionelle Acrylatdispersionen auf Basis von Copolymerisaten von (Meth)Acrylsäureestern von linearen oder verzweigten aliphatischen Monoalkoholen mit 3 bis 10 Kohlenstoffatomen, (Meth)Acrylsäureestern des Methanols und Äthanols, (Meth)Acrylsäureestern von zweiwertigen aliphatischen Alkoholen mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, insbesondere von Glykol, 1,2- und 1,3-Propandiol, 1,2- und 1,4-Butandiol sowie 1,6-Hexandiol, Styrol und Vinyltoluol. Im Fall der selbstvernetzenden Acrylatdispersionen werden Diamine oder bevorzugt Dihydrazine oder Dihydrazide von aliphatischen Dicarbonsäuren mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen eingesetzt; besonders bevorzugt ist Adipinsäuredihydrazid.
- 10
- 15
- 20 Mit den so formulierten Bindemitteln werden Beschichtungen auch auf unedlen Metallen möglich, die dem Substrat einen guten Korrosionsschutz verleihen.

Die Erfindung wird durch die nachstehenden Beispiele erläutert.

## Beispiele

### Beispiel 1

560 g Leinölfettsäure wurden mit 0,6 g Triphenylphosphin als Katalysator auf 140 °C aufgeheizt. 380 g Bisphenol A-Diglycidyläther wurden während zwei Stunden unter gutem Rühren zugegeben, die Mischung wurde bei dieser Temperatur unter Rühren gehalten, bis keine Epoxidgruppen mehr nachzuweisen waren.



### Beispiel 2

100 g des Fettsäure-Epoxidaddukts aus Beispiel 1 wurden mit 70 g Xylol auf 140 °C erhitzt. Zu dieser Vorlage wurden während 8 Stunden eine Mischung von 24,5 g Isobutylmethacrylat, 4,5 g p-Methylstyrol, 15,6 g Methacrylsäure und getrennt davon 4,5 g Di-tert.-Butylperoxid zugegeben. Es wurde nach beendeter Zugabe noch weitere 2 Stunden bei 140 °C gehalten, anschließend wurde auf Zimmertemperatur abgekühlt. Der Festkörper-Massenanteil der erhaltenen Lösung betrug 68,1 %.

### Beispiel 3

222,3 g Isophorondilisocyanat wurden mit 0,5 g Triphenylphosphit auf 50 °C erwärmt. Während einer Stunde wurden 116,1 g Hydroxyäthylacrylat und 0,2 g Hydrochinonmonomethyläther zugesetzt und anschließend unter Rühren auf 80 °C geheizt. Es wurde solange gehalten, bis der Massenanteil an freien Isocyanatgruppen auf 12 % gefallen war.

### Beispiel 4

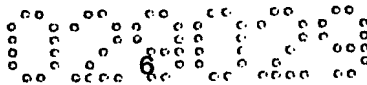
140 g des Produkts aus Beispiel 2 wurden mit 40,0 g des Produkts aus Beispiel 3 gemischt und bei 80 °C so lange unter Rühren gehalten, bis der Massenanteil an freien Isocyanatgruppen auf unter 0,1 % gesunken war. Dann wurde die Temperatur auf 130 °C gesteigert und durch Destillation unter vermindertem Druck das Xylol abgezogen. Nach Abkühlen auf 95 °C wurden 28 g einer wäßrigen Lösung von Lithiumhydroxid (5 g LiOH in 100 g der wäßrigen Lösung) hinzugefügt. Anschließend wurde bei 95 °C über eine Stunde 146 g voll entsalztes Wasser zugegeben. Man erhielt eine wäßrige Dispersion mit einem Festkörper-Massenanteil von ca. 44 % und einer Säurezahl von 47,8 mg/g.

### Beispiel 5

222,3 g Isophorondilisocyanat wurden mit 0,25 g Dibutylzinndilaurat und 0,5 g Triphenylphosphit auf 40 °C erwärmt. Während einer Stunde wurden 130,1 g Hydroxypropylacrylat und 0,2 g Hydrochinonmonomethyläther zugesetzt und anschließend unter Rühren auf 80 °C geheizt. Es wurde solange bei der Temperatur gehalten, bis der Massenanteil an freien Isocyanatgruppen auf 12 % gefallen war.

### Beispiel 6

147,1 g des Produkts aus Beispiel 2 wurden 2 Stunden in xylolischer Lösung gehalten, bis kein Initiator mehr nachweisbar war. Nach Abkühlen auf 80 °C wurden 60,0 g des Produkts aus Beispiel 5, 0,01 g Dibutylzinndilaurat und 0,5 g Hydrochinonmonomethyläther zugemischt und bei 80 °C so lange unter Rühren gehalten, bis der Massenanteil an freien Isocyanatgruppen auf unter 0,1 % gesunken war. Dann wurde die Temperatur auf 130 °C gesteigert und durch Destillation unter vermindertem Druck das Xylol abgezogen. Nach Abkühlen auf 95 °C wurden 29,1 g einer wäßrigen Lösung von Lithiumhydroxid (5 g LiOH in 100 g der wäßrigen Lösung) hinzugefügt. Anschließend wurde bei 95 °C über eine Stunde 215 g voll entsalztes Wasser zugegeben. Man erhielt eine wäßrige Dispersion mit einem Festkörper-Massenanteil von ca. 40 %.



### Beispiel 7 Lacktest

Jeweils 100 g der Produkte aus Beispiel 4 und Beispiel 6 wurden mit Zusatz von 6 g einer Lösung von @Irgacure 184 in Butylglykol (50 g @Irgacure 184 in 100 g der Lösung) zu Lacken 7.1 und 7.2 verarbeitet.

Dabei wurden die folgenden Ergebnisse erhalten:

Bei Aufziehen der Lacke auf ein Eisenblech mit einer Naßfilmstärke von 120 µm und nachfolgenden Härtung durch Bestrahlen mit einer Quecksilberdampflampe (Leistung 80 W, in einer Entfernung von 10 cm und einer Bandgeschwindigkeit von 4 m/min) ergab sich eine stippenfreie und glatte Beschichtung, die gemessene Erichsen-Tiefung (ISO 1520) war in beiden Fällen 9 mm, das Ergebnis der Schlagprüfung (Erichsen, ASTM D-2794-90) und des Gitterschnitt-Tests (DIN EN ISO 2409) war bei dem Lack 7.1 10/10 bzw. 3/5 und bei dem Lack 7.2 30/20 und 0/5.

### Beispiel 8 Beständigkeitstest auf Holz

Nach Aufziehen der genannten Lacke aus Beispiel 7 auf Holzplatten (200 µm, zweifache Beschichtung) und Härtung wie im Beispiel 7 wurde die Beständigkeit der Beschichtungen gemäß DIN 68861, Teil 1A gemessen. Die folgenden Ergebnisse wurden erhalten (Einwirkdauer jeweils 16 Stunden):

Prüfmittel	Beschichtung mit Lack 7.1	Beschichtung mit Lack 7.2
wäßrige Ammoniaklösung ( 10 %)	0	0
wäßrige Äthanollösung (48 %)	0	0
Rotwein	0	0
Pulverkaffee	0	1
schwarzer Tee	0	0
voll entsalztes Wasser	0	0
Lippenstift	0	0
schwarze Kugelschreibertinte	0	0

### Beispiel 9 Mischungen mit Acrylatdispersionen

Es wurden Mischungen der Lacke aus 7.1 und 7.2 mit verschiedenen Acrylatdispersionen hergestellt:

- 9.1 selbstvernetzende Acrylatdispersion auf Basis von Butylacrylat-Methylmethacrylat-Diacetonacrylamid-Copolymerisat und Adipinsäuredihydrazid als Vernetzer; 45 % Festkörper-Massenanteil
- 9.2 hydroxyfunktionelle Acrylatdispersion auf Basis von Butylacrylat, Butylmethacrylat und Styrol



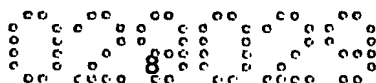
- 9.3 hydroxyfunktionelle Acrylatdispersion auf Basis von Butylmethacrylat, Hydroxyäthylmethacrylat und Styrol
- 9.4 selbstvernetzende Acrylatdispersion auf Basis von Butylacrylat-Methylmethacrylat-Styrol-Diacetonacrylamid-Copolymerisat und Adipinsäuredihydrazid als Vernetzer

5

Dabei sind die Mischungen (Massenverhältnis der Festkörper des Bindemittels gemäß der Erfindung zu Acrylat jeweils 90:10, 75:25 und 50:50), in allen Fällen klar (ohne Trübung), die beschichteten Flächen sind im Fall der Verwendung des Lacks aus 7.1 durchweg einwandfrei, während bei Verwendung des Lacks aus 7.2 mit der Acrylatdispersion 9.3 einige Schlieren auf der Fläche festzustellen waren. Beim Abmischen kommerzieller strahlenhärter Bindemittel mit Acrylatdispersionen entsprechend den oben genannten wurde in allen Fällen bereits in der Mischung eine Trübung festgestellt; alle damit beschichteten Flächen wiesen Störungen im Aussehen auf.

10

15



## Patentansprüche

1. Bindemittel für strahlenhärtbare wäßrige Lacke, enthaltend Reaktionsprodukte **ABCDE** aus Epoxidverbindungen **A** mit mindestens zwei Epoxidgruppen pro Molekül, ungesättigten Fettsäuren **B**, olefinisch ungesättigten Monomeren **C**, aliphatische Hydroxylgruppen enthaltende ungesättigte Verbindungen **D** und multifunktionellen Isocyanaten **E**, wobei die Verbindungen **C** stets direkt mit den Verbindungen **B**, die Verbindungen **D** stets direkt mit den Verbindungen **E** und die Verbindungen **A** stets direkt mit den Verbindungen **B** verbunden sind.

2. Bindemittel nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Epoxidverbindungen **A** ausgewählt sind aus Äthern von Glycidylalkohol mit zwei- oder mehrwertigen Alkoholen mit 2 bis 20 Kohlenstoffatomen, Äthern von Glycidylalkohol mit Polyäthylen- oder Polypropylenglykol, Estern des Glycidylalkohols mit zwei- oder mehrbasigen aliphatischen Carbonsäuren sowie den Diglycidyläthern von Bisphenol A, Bisphenol F, Dihydroxydiphenyl und Dihydroxydiphenylsulfon und Additionsprodukten der genannten Diepoxide an zwei- oder multifunktionelle Hydroxyverbindungen.

3. Bindemittel nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die ungesättigten Fettsäuren **B** aliphatische lineare oder verzweigte Monocarbonsäuren sind und mindestens eine olefinische Doppelbindung und 6 bis 30 Kohlenstoffatome haben.

4. Bindemittel nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die olefinisch ungesättigten Monomeren **C** mindestens einen Massenanteil von 10 % einer olefinisch ungesättigten Säure enthalten.

5. Bindemittel nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die ungesättigten Hydroxylgruppen enthaltenden aliphatischen Verbindungen **D** Ester zwei- oder mehrwertiger Alkohole mit olefinisch ungesättigten Säuregruppen enthaltenden Monomeren sind.

6. Bindemittel nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die multifunktionellen Isocyanate **E** aromatische, aliphatische und gemischt aromatisch-aliphatische Isocyanate mit mindestens zwei Isocyanatgruppen sind.

7. Verfahren zur Herstellung von Bindemittel nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß

- im ersten Schritt die Epoxidverbindungen **A** mit den ungesättigten Fettsäuren **B** zu Addukten reagiert werden, wobei auf ein Mol der Epoxidgruppen in **A** mindestens 0,5 mol der Säuregruppen der Fettsäuren **B** eingesetzt werden,
- im zweiten Schritt die so gebildeten Addukte **AB** mit den olefinisch ungesättigten Monomeren **C** in Gegenwart von radikalischen Initiatoren umgesetzt werden, wobei die Verbindungen **C** polymerisieren und zumindest teilweise Pfropfäste auf den Addukten **AB** bilden,

- in einem separaten dritten Schritt halbverkappte Isocyanate **DE** durch Reaktion der hydroxyfunktionellen olefinisch ungesättigten Monomeren **D** mit den mehrfunktionellen, bevorzugt difunktionellen Isocyanaten **E** hergestellt werden, die
  - im vierten Schritt mit den im zweiten Schritt gebildeten Pfcopolymerisate **ABC** durch Veresterung zu den Produkten **ABCDE** umgesetzt werden.
- 5
8. Verfahren nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß im ersten Schritt ein Verhältnis von mindestens 0,7 mol/mol gewählt wird.
- 10 9. Verfahren nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß im vierten Schritt ein Stoffmengenverhältnis von Hydroxylgruppen in **DE** zu den Säuregruppen in **ABC** 0,2 bis 0,9 gewählt wird.
- 15 10. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß im vierten Schritt das Stoffmengenverhältnis so gewählt wird, daß das Reaktionsprodukt **ABCDE** eine Säurezahl von 5 mg/g bis 80 mg/g aufweist.
11. Verwendung von Bindemitteln nach Anspruch 1 zur Herstellung von strahlenhärtenden Beschichtungsmitteln, umfassend Mischen von Bindemittel gemäß Anspruch 1 und Photoinitiatoren.
- 20 12. Verwendung nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß zusätzlich wäßrige Acrylatdispersionen zugemischt werden.

4570

## Zusammenfassung

5

### Bindemittel für strahlenhärtbare wäßrige Lacke

10

Bindemittel für strahlenhärtbare wäßrige Lacke, enthaltend Reaktionsprodukte **ABCDE** aus Epoxidverbindungen **A** mit mindestens zwei Epoxidgruppen pro Molekül, ungesättigten Fettsäuren **B**, olefinisch ungesättigten Monomeren **C**, ungesättigte aliphatische Hydroxylgruppen enthaltende Verbindungen **D** und mehrfunktionellen Isocyanaten **E**, wobei die Verbindungen **C** stets direkt mit den Verbindungen **B**, die Verbindungen **D** stets direkt mit den Verbindungen **E** und die Verbindungen **A** stets direkt mit den Verbindungen **B** verbunden sind, Verfahren zu deren Herstellung und ihre Verwendung

**PCT/EP2004/009339**



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**